## 04;07;12

# Использование резонансного комбинационного рассеяния света для диагностики плазмы

#### © Г.Т. Раздобарин, Р.Р.Е. Саломаа (R.R.E. Salomaa), М.И.К. Сантала (M.I.K. Santala), С.Ю. Толстяков

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург Технический университет, Хельсинки (Helsinki University of Technology), Финляндия

#### Поступило в Редакцию 16 июня 1999 г.

Обсуждается применение метода диагностики, основанного на рассеянии лазерного излучения атомами в плазме. Высокая чувствительность диагностики обусловлена резонансным увеличением сечения комбинационного рассеяния при малой отстройке от точного оптического резонанса с промежуточным уровнем. Измерения пространственного распределения возбужденных атомов аргона производились в плазме высокочастотного индукционного разряда в широком диапазоне отстроек от точного резонанса как в условиях линейности, так и при насыщении интенсивности рассеяния. По результатам выполненных экспериментов произведен анализ чувствительности метода и сформулированы требования к диагностике с целью оптимизации условий эксперимента.

Комбинационное (рамановское) рассеяние света традиционно используется в спектроскопических исследованиях как эффективный метод изучения строения молекул и их взаимодействия со средой. Благодаря применению перестраиваемых лазеров значительно расширился круг объектов, доступных исследованию. Это обусловлено, в первую очередь, возможностью выбора длины волны генерации вблизи оптического резонанса, в результате чего сечение комбинационного рассеяния увеличивается на много порядков [1]. Результаты теоретических и экспериментальных исследований процессов вблизи-резонансного комбинационного рассеяния света представлены во многих работах. Некоторые из них имеют отношение к диагностике плазмы [2–4]. Суть диагностического метода состоит в том, что плазма освещается лазерным излучением на длине волны вблизи оптического резонанса одной из

46

линий поглощения. Рассеянное излучение наблюдается непосредственно на длине волны лазера либо на других длинах волн, соответствующих комбинационным частотам для перехода с виртуального на смещенные уровни. Заметим, что комбинационное рассеяние предпочтительней для задач диагностики плазмы, поскольку большое отличие длин волн зондирующего и рассеянного излучения позволяет устранить помеху от сигнала паразитного рассеяния. По этой же причине отсутствуют помехи, обусловленные рассеянием света на электронах. Исследуемое излучение собирается из малого объема плазмы, где пересекаются лазерный пучок и конус лучей наблюдения и, таким образом, содержит информацию о локальных параметрах плазмы. Отстройка от точного резонанса позволяет устранить возможные измерительные ошибки, обусловленные реабсорбцией, что особенно важно при исследовании плазмы, имеющей значительную оптическую толщину. Благодаря отстройке отсутствует фон собственного излучения плазмы на линии оптического перехода, представляющий основную помеху для диагностики плазмы методом резонансной флуоресценции [5].

При постановке диагностических экспериментов в плазме следует учитывать специфику процессов комбинационного рассеяния, обусловленную существенным вкладом столкновительной релаксации. Для плазмы с достаточно высокой концентрацией заряженных частиц отношение скоростей поперечной и продольной релаксации может оказаться много больше единицы [6]. Это существенным образом влияет на динамику изменения населенности уровней возбуждаемого перехода в поле световой волны [7] и в итоге усложняет анализ процессов рассеяния. Разработка нового метода диагностики направлена на оптимизацию условий эксперимента с тем, чтобы по возможности избавиться от влияния модельных ограничений, обусловленных учетом столкновительной (поперечной) релаксации, и увеличить чувствительность. Главная задача выполненных экспериментов состояла в методических разработках и, в первую очередь, в исследовании сигналов рассеяния в широком диапазоне отстроек от точного резонанса, а также зависимости интенсивности рассеяния от плотности потока зондирующего пучка.

Опыты по комбинационному рассеянию производились в аргоновой плазме индукционного ВЧ разряда в потоке газа при атмосферном давлении. Для такого разряда типичные значения концентрации и температуры электронов составляют  $n_e \sim 10^{15} \, {\rm cm}^{-3}$ ,  $T_e \leq 1 \, {\rm eV}$  [8]. Упрощенная схема уровней возбуждаемых переходов показана на рис. 1.



**Рис. 1.** Запись сигналов комбинационного рассеяния *1* и флуоресцентного свечения *2* (спектральное разрешение 0.65 nm, отстройка лазерной длины волны от точного резонанса 1 nm). В верхней части рисунка показана упрощенная схема уровней возбуждаемых переходов.

Для возбуждения сигнала рассеяния использовался лазер на красителе с регулируемой отстройкой от точного резонанса с переходом 1s5-2p2 на длине волны 696.5 nm. Рассеянное излучение наблюдалось вблизи длины волны 772.4 nm перехода 2p<sub>2</sub>-1s<sub>3</sub>. Соответствующие силы осцилляторов для выбранных переходов равны  $f_{1s_5-2p_2} = 0.03$ , Энергия и длительность импульса зондирования  $f_{1s_3-2p_2} = 0.34.$ составляли 1-2 mJ и 10 ns, частота следования импульсов до 25 Hz. Рассеивающий объем проецировался с двукратным уменьшением на входную щель монохроматора. На выходе прибора излучение регистрировалось фотоумножителем. В различных экспериментах объем рассеяния выбирался от  $\sim 10^{-4}$  до  $\sim 10^{-3}\,\mathrm{cm^3}$ . Телесный угол сбора рассеянного излучения в направлении, перпендикулярном оси зондирования, был 5.6 · 10<sup>-3</sup> sr. Для увеличения точности измерений применялось многопроходное зондирование плазмы (рис. 2), а также производилось накопление сигналов рассеяния за несколько десятков



Рис. 2. Схема многопроходного зондирования.

импульсов генерации лазера. Абсолютная калибровка чувствительности аппаратуры выполнялась известным методом рамановского рассеяния на молекулах азота на частотах, соответствующих вращательным переходам [9]. Спектральная чувствительность аппаратуры измерялась с помощью калиброванной лампы накаливания.

На рис. 1 представлены сигналы комбинационного рассеяния и флуоресценции на фоне собственного излучения плазмы, возбуждаемые одновременно излучением лазера при спектральной отстройке 1 nm от точного резонанса. Принципиальное отличие приведенных на рис. 1 длинноволнового и коротковолнового участков спектрограммы состоит в том, что точность регистрации сигналов флуоресценции определяется исключительно фоном линейчатого излучения плазмы, интенсивность которого почти на 3 порядка больше континуума. В то же время точность регистрации сигналов рамановского рассеяния зависит от величины самого сигнала (около 100 фотоэлектронов для максимальных отсчетов на спектрограмме) и практически не зависит от фона сплошного спектра.

Влияние фона сплошного спектра может оказаться существенным по мере уменьшения сигнала комбинационного рассеяния с увеличением отстройки. Это видно из рис. 3, на котором представлены результаты измерения интенсивности сигнала комбинационного рассеяния при разных отстройках лазерной длины волны до 2 nm. Там же приведена теоретическая зависимость интенсивности рассеяния  $\sim \lambda^{-2}$  в соответствии с функцией Лорентца.



**Рис. 3.** Зависимость сигнала комбинационного рассеяния от величины отстройки длины волны генерации лазера.

Как известно, по мере увеличения плотности потока зондирующего излучения интенсивность рассеяния перестает зависеть линейно от падающего потока и в пределе достигает насыщения [10,11]. Насыщение рассеяния создает определенные удобства для диагностики плазмы. В частности, при коллимации зондирующего пучка наблюдение рассеяния из меньшего объема плазмы увеличивает отношение сигнала к фону. Кроме того, величина регистрируемого сигнала при насыщении интенсивности рассеяния перестает зависеть от скорости столкновительных релаксационных процессов. Нами была измерена нелинейная зависимость интенсивности комбинационного рассеяния от плотности потока зондирующего излучения при фиксированной отстройке 1 nm от точного резонанса. Измеренные значения сигналов рассеяния для набора значений энергии генерации лазера (диаметр пятна 0.2 mm) приведены на рис. 4. Через экспериментальные точки проведена кривая наилучшего





Рис. 4. Зависимость интенсивности комбинационного рассеяния от плотности энергии зондирования.

приближения по данным работы [11] в предположении, что скорость столкновительного много больше скорости радиационного затухания. По оси абсцисс наряду с плотностью энергии зондирования отложены значения квадрата частоты Раби, приведенной к частотной отстройке  $(\Omega/\Delta)^2$ , соответствующие найденной кривой наилучшего приближения. Величину  $(\Omega/\Delta)^2$  можно рассматривать как отношение плотности потока зондирования к его насыщающему значению (параметр насыщения). Как видно из рисунка, при выбранной геометрии пучка и отстройке 1 nm условию насыщения  $(\Omega/\Delta)^2 = 1$  соответствует плотность энергии зондирования  $\sim 8 \, \mathrm{J/cm^2}$ .

Результаты измерений радиального распределения концентрации возбужденных атомов аргона по сечению факела приведены на рис. 5. Измерения выполнены при сканировании оси наблюдения вдоль лазерного пучка (поперек плазменного факела) с шагом 0.7 mm при



**Рис. 5.** Радиальное распределение концентрации возбужденных атомов аргона на уровне  $1s_5$  по сечению факела.

усреднении отсчетов за несколько десятков импульсов лазера на каждом шаге сканирования. Пространственное разрешение вдоль пучка было 1 mm при фокусировке пучка в пятно диаметром 0.5 mm. Измерения производились в отсутствие насыщения интенсивности рассеяния. В этом случае не требовался аккуратный учет пространственной неоднородности пучка, которая одинаково влияет на результаты измерений интенсивностей полезного и калибровочного сигналов рассеяния. Измеренный профиль концентрации на рис. 5 показывает детальную картину формирования плазменного факела с существенным нарушением осевой симметрии. Заметим, что хордовые наблюдения свечения линии на длине волны 772.4 nm, соответствующей переходу  $2p_2-1s_3$ , не дают истинного распределения атомных концентраций вследствие реабсорбции излучения.

В условиях нашего эксперимента фон сплошного спектра не создавал особых проблем при соотношении диаметров плазмы и зондирующего пучка ~ 10. В этих условиях нижний предел измеримых атомных концентраций определяется статистическим разбросом регистрируемого числа фотоэлектронов на фотокатоде ФЭУ, соответствующих сигналу рассеяния. Если экстраполировать условия нашего эксперимента на другие плазменные объекты большего размера, то для насыщающей плотности потока лазерного излучения предельное измеряемое количество атомов в одном импульсе генерации в разрешимом объеме  $\sim 1\,{\rm cm}^3$ оказывается  $\sim 10^7$  для переходов на комбинационных частотах с силой осциллятора ~ 1. Для более слабых линий предельно измеримые концентрации возрастают обратно пропорционально силе осциллятора. Исходя из условия насыщения, энергия лазера должна возрастать квадратично с увеличением отстройки от точного резонанса. По результатам наших экспериментов при отстройке от точного резонанса 1 nm, длине волны зондирования 700 nm, длительности импульса ~ 10 ns требуемая плотность энергии пучка для  $(\Omega/\Delta)^2 = 1$  оказывается  $\sim 0.25/f$  (J/cm<sup>2</sup>), где f — сила осциллятора для перехода вблизи линии генерации. Уменьшение спектральной отстройки за пределами доплеровской ширины контура поглощения ограничено светосилой применяемых спектрометров. Использование более светосильных спектрометров на основе интерферометра Фабри-Перо позволит иметь при тех же размерах источника меньшую спектральную отстройку и тем самым существенно снизить требования к энергии зондирования плазмы.

### Список литературы

- [1] *Placzek G.* // Handbook der Radiologie. 1934. VI Akademische Verlagsgesellschaft. Leipzig. V. 2.
- [2] Döbele H.F., Hirsch K. // Phys. Lett. 1975. 54 A. P. 267.
- [3] Wrobel W.G., Steuer K.H., Röhr H. // Phys. Rev. Lett. 1976. V. 37. P. 1218.
- [4] Vriens L., Adriaansz M. // J. of Appl. Phys. 1974. V. 45. P. 4422.
- [5] Раздобарин Г.Т., Фоломкин И.П. // ЖТФ. 1979. Т. 49. С. 1353.
- [6] Грим Г. // Уширение спектральных линий в плазме. М.: Мир, 1978.
- [7] Раутиан С.Г., Смирнов Г.И., Шалагин А.М. // Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул. Новосибирск: Наука, 1979.

- [8] De Regt J.M., Engeln R.A.H., de Groote F.P.J. et al. // Rev. Sci. Instrum. 1995. V. 66. P. 3228.
- [9] Hovard J. et al. // J. Phys. D: Appl. Phys. 1979. V. 12. P. 1435.
- [10] Carlsten J.L., Szöke A., Raymer M.G. // Phys. Rev. A. 1977. V. 15. P. 1029.
- [11] Courtens E., Szöke A. // Phys. Rev. A. 1977. V. 15. P. 1588.